JP-09-281511 E

[Title of the Invention] METHOD OF MANUFACTURING LIQUID
CRYSTAL DISPLAY PANEL

[Abstract]

[Object] There is provided an improved method of manufacturing a liquid crystal display panel which does not require an injection port as a simplified process of injecting the liquid crystal.

[Solving Means] This liquid crystal display panel is manufactured by dropping a liquid crystal 17 within a display region of a first transparent substrate 11; bonding the first transparent substrate 11 to a second transparent substrate 12 under reduced pressure using a main seal 14, the main seal 14 including a base resin 14A having polymerized and cured molecules as a main component, a seal monomer component 14C contributing to the polymerization, and a microcapsule 14B containing the seal monomer component and melt by heat; returning the bonded first and second transparent substrates 11 and 12 back to a normal pressure; heating the main seal 14 to melt the microcapsule 14B; and polymerizing the base resin 14A to be cured.

[Claims]

[Claim 1] A method of manufacturing a liquid crystal display panel, comprising:

dropping a liquid crystal within a display region of a first transparent substrate;

bonding the first transparent substrate to a second transparent substrate under reduced pressure using a main seal, the main seal including a base resin having polymerized and cured molecules as a main component, a seal monomer component contributing to the polymerization, and a microcapsule containing the seal monomer component and melt by heat;

returning the bonded first and second transparent substrates to a normal pressure;

heating the main seal to melt the microcapsule; and polymerizing the base resin to be cured.

[Claim 2] The method according to Claim 1, wherein the microcapsule has a diameter smaller than that of a spacer member ensuring a gap of the main seal.

[Claim 3] The method according to Claim 1 or 2, wherein the main seal is an ultraviolet (UV) curable adhesive composed of the base resin formed of denaturalized acrylate, and the seal monomer component having a photopolymerization initiator, an adhesive reinforcement agent and a reactive diluent.

[Claim 4] The method according to any one of Claims 1 to 3, wherein polymerizing the base resin to be cured is carried out right after heating the main seal to melt the

microcapsule.

[Claim 5] The method according to any one of Claims 1 to 4, wherein the microcapsule has a melting temperature lower than a melting point or a softening point of the base resin.

[Claim 6] The method according to any one of Claims 1 to 5, wherein the microcapsule has a melting temperature lower than a boiling point of the seal monomer component.

[Claim 7] The method according to any one of Claims 1 to 6, wherein heating the main seal to melt the microcapsule includes fitting a region for forming the main seal from both surfaces of the first and second transparent substrates by means of a pair of hot plates, and heating the main seal.

[Detailed Description of the Invention]
[0001]

[Technical Field of the Invention]

The present invention relates to a drop injection method which does not require an injection port as a simplified process of injecting the liquid crystal, which provides the liquid crystal panel without any alignment defects near the seal by dispersing microcapsules having a diameter smaller than a spacer member among a main seal, and breaking the capsule by means of heat right before curing the seal to make a base resin and a monomer component such as a curable agent mixed so that the monomer component is

prevented from being eluted into the liquid crystal.

[0002]

[Description of the Related Art]

When a liquid crystal is injected into a liquid crystal panel, there is a method referred to as a drop injection method in order to shorten the time required for the injection. An invention according to this method is already implemented by inventors of the present invention (See Japanese Patent Publication No. 1995-159795). Hereinafter, this drop injection method will be briefly described. Fig. 4 is a view for explaining the drop injection method. First, as shown in Fig. 4A, spacer members 3 are sprayed and adhered on a first transparent substrate 1 of two transparent substrates 1 and 2 which are already subjected to alignment treatment. In addition, a main seal 4 composed of an adhesive surrounding a display region is formed in the second transparent substrate 2, and a liquid crystal 7 is dropped into the display region.

[0003]

Next, these transparent substrates 1 and 2 are bonded to form a panel 6, and as shown in Fig. 4B, a uniform pressure is applied to entire surfaces of the panel 6 to make the liquid crystal 7 uniformly spread to the edge within the main seal 4, a predetermined gap between the transparent substrates 1 and 2 is formed, and the main seal

4 is cured, thereby obtaining the liquid crystal panel as shown in Fig. 4C.

[0004]

According to this drop injection method, a time required for a process of injecting the liquid crystal is significantly reduced compared to the conventional method, and only a required liquid crystal can be used, and a yield can be enhanced, which can lead to the significant cost down. The drop injection method employs a resin cured by the polymerization as the main seal 4.

[0005]

This resin is composed of two components such as a base resin and a monomer component. Among these, the base resin is one which is present before it becomes a polymer, which is so called a prepolymer, and is cured by photopolymerizing by an ultraviolet (UV) ray and constitutes a main component of an adhesive resin. In addition, the monomer component is composed of a photopolymerization initiator, an adhesive reinforcement agent, and a reactive diluent.

[0006]

The photopolymerization initiator is a material which initiates the photopolymerization and is consumed during a reaction. In addition, the adhesive reinforcement agent is added to reinforce an adhesive property of the main seal, and the reactive diluent is added because it makes the

polymerization reaction uniformly proceed without depending on a location by reducing a viscosity of the base resin. In the above-described process of manufacturing the panel, a material already mixed with the base resin and the monomer component is used as the main seal 4, and the transparent substrates 1 and 2 are pressed and aligned to each other, and UV rays are irradiated on the main seal 4. The photopolymerization initiator within the monomer component initiates the polymerization of the base resin, which is photopolymerized and cured, so that the upper and lower transparent substrates are bonded to each other.

[0007]

However, in the related art, a material already mixed with the base resin and the monomer component is used as the main seal, and the transparent substrates 1 and 2 are pressed and aligned to each other as shown in Fig. 5A, and the liquid crystal 7 becomes in contact with the main seal 4 as shown in Fig. 5B, so that the monomer component 8 leaks into the liquid crystal 7, which causes an alignment defect of an alignment layer (not shown) near the seal 4 to occur during the leakage. In addition, Fig. 5 is a partially enlarged view of a section of the liquid crystal panel near the seal.

[8000]

A molecular weight of the monomer component 8 is close

to that of the liquid crystal molecule and has high compatibility, so that the leaked monomer component is melt into the liquid crystal 7 near the seal 4. Some of the monomer components 8 is apt to be dissociated into ions, which is eluted into the liquid crystal 7 so that a voltage retention rate of the liquid crystal 7 is degraded, which causes decoloration. This phenomenon is more significant when dielectric anisotropy of the liquid crystal is higher, which is particularly troublesome in the low voltage driven liquid crystal which is recently noticed.

[0009]

An object of the present invention is to solve the above-mentioned problems.

[0010]

[Means for Solving the Problems]

In order to accomplish the above-mentioned object, the present invention provides a method of manufacturing a liquid crystal display panel, which includes: dropping a liquid crystal within a display region of a first transparent substrate; bonding the first transparent substrate to a second transparent substrate under reduced pressure using a main seal, the main seal including a base resin having polymerized and cured molecules as a main component, a seal monomer component contributing to the polymerization, and a microcapsule containing the seal

monomer component and melt by heat; returning the bonded first and second transparent substrates to a normal pressure; heating the main seal to melt the microcapsule; and polymerizing the base resin to be cured. A diameter of the microcapsule may be smaller than a diameter of a spacer member ensuring a gap of the main seal, and the main seal may be an ultraviolet (UV) curable adhesive composed of the base resin formed of denaturalized acrylate, and the seal monomer component having a photopolymerization initiator, an adhesive reinforcement agent and a reactive diluent. In addition, polymerizing the base resin to be cured may be carried out right after heating the main seal to melt the microcapsule, and a melting temperature of the microcapsule may be lower than a melting point or a softening point of the base resin. A melting temperature of the microcapsule may be lower than a boiling point of the seal monomer component, and heating the main seal to melt the microcapsule may include fitting a region for forming the main seal from both surfaces of the first and second transparent substrates by means of a pair of hot plates, and heating the main seal.

[0011]

Subsequently, operation effects of the present invention will be described. According to the present invention, the seal monomer component contributing to the

polymerization reaction of the base resin uses the main seal encapsulated within the microcapsule melt by the heat, so that the seal monomer component is still encapsulated within the microcapsule when the first and second transparent substrates are bonded to each other so that it is not eluted into the liquid crystal. As a result, contamination of the seal or the alignment defects of the alignment layer near the seal resulted from the elution, or decoloration due to a degraded voltage retention rate resulted from the contamination of the liquid crystal can be suppressed.

[0012]

In addition, the compatability of the base resin and the liquid crystal is significantly low, so that it is not necessary to perform curing right after bonding the transparent substrates so as to prevent the contamination of the liquid crystal, thereby enhancing workability. In addition, according to the present invention, the diameter of the microcapsule is smaller than that of the spacer member ensuring the gape of the main seal, so that the pressure is not directly delivered to the capsule because of the presence of the spacer member when the transparent substrates are aligned and pressed to be bonded each other. As a result, the seal monomer component can be suppressed from being flowed out from the broken capsule.

[0013]

In addition, according to the present invention, the main seal is a UV curable adhesive which is composed of the base resin formed of denaturalized acrylate, and the seal monomer component having a photopolymerization initiator, an adhesive reinforcement agent and a reactive diluent, so that it can be rapidly cured by irradiating the UV rays. In addition, according to the present invention, polymerizing the base resin to be cured is carried out right after heating the main seal to melt the microcapsule, so that the seal monomer component can be prevented from being eluted at the seal/liquid crystal interface.

[0014]

In addition, according to the present invention, a melting temperature of the microcapsule is lower than a melting point of a softening point of the base resin, so that the base resin can be prevented from being melted and eluted into the liquid crystal during a process of heating the microcapsule, or the seal monomer component of the base resin can be prevented from being smeared out from the base resin and eluted into the liquid crystal. In addition, according to the present invention, the melting temperature of the microcapsule is lower than the boiling point of the seal monomer component can be prevented from being evaporated to be bubbles during a process of heating the microcapsule.

[0015]

Furthermore, according to the present invention, heating the main seal to melt the microcapsule includes fitting a region for forming the main seal from both surfaces of the first and second transparent substrates by means of a pair of hot plates, and heating the main seal, so that melting the capsule can be uniformly and rapidly carried out, and the unreacted seal monomer component can be prevented from being eluted into the liquid crystal resulted from inclination to one side or temperature distribution within the main seal.

[0016]

[Embodiments]

Hereinafter, embodiments of the present invention will be described with reference to the attached drawings. Fig. 1 is a view for explaining a drop injection method, Fig. 2 is a cross-sectional view for explaining a state near a seal in a method of manufacturing a liquid crystal display panel associated with an embodiment of the present invention. And, Fig. 3 is a graph illustrating a relationship between a softening point and an average molecular weight of main seal (e.g., epoxy acrylate).

[0017]

First, a method of manufacturing the main seal used to bond the transparent substrate in this method will be

described before describing the method of manufacturing the liquid crystal display panel associated with the present embodiment. The main seal is composed of a base resin and a seal monomer component encapsulated within a capsule.

[0018]

The base resin is one which is present before it becomes a polymer, which is so called a prepolymer, and is cured by photopolymerizing using an ultraviolet (UV) ray and constitutes a main component of an adhesive resin. In the present embodiment, an epoxy acrylate resin is used as one kind of denaturalized acrylate. The seal monomer component is composed of a photopolymerization initiator, an adhesive reinforcement agent, and a reactive diluent.

[0019]

The photopolymerization initiator is a material which initiates the photopolymerization and is consumed during a reaction. In the present embodiment, radical reactive cleavage benzoisobutylether or disopropyl ketone is employed. In addition, the adhesive reinforcement agent is added to reinforce an adhesive property of the main seal, and the reactive diluent is added because it makes the polymerization reaction uniformly proceed without depending on a location by reducing viscosity of the base resin. In the present embodiment, any one among 1,4-buthandiol diacrylate (BUDA), 1,6-hexandiol diacrylate (HDDA),

diethyleneglycol diacrylate (DEGDA), or neopentylglycol diacrylate (NPGDA which have 2 functional monomers having a low viscosity and a low volatile property is employed.

[0020]

The seal monomer component is encapsulated by the thermo plastic resin such as poly metha crylacid methyl, polystyrene, polyethylene (melting point: 80°C to 110°C) using the well known techniques such as an interface polymerization method or an in-situ polymerization method, so that a microcapsule having a diameter of 1 µm to 5 µm is formed. This microcapsule is mixed at a rate of 10 to 30wt% in the epoxy acrylate in which the molecular weight is adjusted (in the present embodiment, average molecular weight 2000) so as to make softening point become 110°C or more.

[0021]

In this case, to make the melting temperature of the epoxy acrylate as the base resin become 110°C or more of the microcapsule is because the base resin is softened while the microcapsule is melt if the softening point of the base resin is less than 110°C when the microcapsule is melt by heat so that it is eluted into the liquid crystal.

[0022]

Fig. 3 is a graph illustrating a relationship between a softening point and an average molecular weight of epoxy

acrylate. In order to make the melting temperature of the epoxy acrylate as the base resin become 110°C or more of the microcapsule and prevent the base resin from being softened even when the microcapsule is melt, it can seen from Fig. 3 that the average molecular weight of the epoxy acrylate should be at least 2000. Accordingly, it is 2000 in the present invention.

[0023]

A glass fiber spacer (made by Nippon Electric Glass/6.5 µm) for ensuring a gap between the transparent substrates is added by 0.05wt% to the mixture between the base resin and the microcapsule containing the seal monomer component, and an arbitrary amount of volatile dilute solvent (e.g., acetic vinyl/boiling point of 73°C) is added thereto and sufficiently agitated. After the agitation, the volatile dilute solvent is removed by vacuum drying, so that the main seal is obtained.

[0024]

In addition, a known additive may be added to the seal monomer component, if necessary. Hereinafter, a method of manufacturing the liquid crystal display panel using the main seal will be described. As shown in Fig. 1A, the main seal 14 formed by the above-described process is applied to the frame using a dispenser (not shown) on the first transparent substrate 11 which is already orientated and in

which a color filter having a thickness of 1.5 µm (not shown) is formed on the surface, and a liquid crystal (e.g., MERCK ZLI-4792) 17 is uniformly dropped within the surface by the required amount based on the frame area and the cell thickness using an electronic valve controlling dispenser(not shown).

[0025]

In the meantime, an adhesive spacer (e.g. Gum Hayakawa; thermal melting type/5.0 \(\mu \) 13 is sprayed in the alreadly orientated second transparent substrate 12 where a drive device such as an active matrix thin film transistor (TFT) which is not shown is formed, and then fixed by a heat of 150°C. Subsequently, the first transparent substrate 11 is mounted on a lower stage (not shown) within a vacuum chamber and fixed by a guide (not shown). A retention plate (not shown) is held between the second transparent substrate 12 and the first transparent substrate 11, and the second transparent substrate 12 is set on the first transparent substrate 11. Then, an approximate alignment is carried out, and they are fixed by the guide and then aligned. The vacuum chamber is then vacuumized and the retention plate is removed therefrom, and the lower stage is moved upward to make the transparent substrates 11 and 12 aligned. The lower stage is moved upward to make the transparent substrates 11 and 12 aligned until the main seal 14 is sufficiently

pressed by a gap (about 10 µm).

[0026]

Subsequently, the second transparent substrate 12 becomes free from the fixation and the lower stage is moved downward to make an atmosphere within the chamber returned to a normal pressure, and pressing is carried out until the gap between both substrates is a predetermined thickness (display part: 5.0 μm, seal part: 6.5 μm) (Fig 1B). Fig. 2A shows the cross-sectional view near the seal of the liquid crystal display panel at this time. In addition, Referring to Fig. 2, a reference numeral 18 denotes a color filter having a thickness of 1.5 µm, 14D denotes a fiber spacer as one example of the spacer member ensuring the gap of the main seal. In this case, the seal monomer component 14C contained in the main seal 14 is still encapsulated within the microcapsule 14B as shown in Fig. 2A, which is not eluted into the liquid crystal or the base resin 14A, so that contamination of the seal or the alignment defects of the alignment layer near the seal resulted from the elution, or decoloration due to a degraded voltage retention rate resulted from the contamination of the liquid crystal can be suppressed.

[0027]

In addition, according to the present invention, the diameter of the microcapsule is $1\,\mu\!m$ to $5\,\mu\!m$, which is smaller

than the diameter of the fiber spacer 14D, that is, 6.5 µm, so that the pressure is not directly delivered to the capsule because of the presence of the spacer member when the transparent substrates 11 and 12 are aligned and pressed to be bonded each other. As a result, the seal monomer component can be suppressed from being flowed out from the broken capsule.

[0028]

In addition, the compatability of the base resin and the liquid crystal is significantly low, so that it is not necessary to perform curing right after bonding the transparent substrates so as to prevent the contamination of the liquid crystal, thereby enhancing workability.

Subsequently, the first and second transparent substrates 11 and 12 are accurately aligned, and four sides of these transparent substrates 11 and 12 are temporarily fixed.

[0029]

The bonded transparent substrates 11 and 12 are heated by a pair of hot plates HP1 and HP2 at a temperature of 80°C to 110°C (which is dependent on the capsule material) to melt the microcapsule 14B. A cross-sectional view near the seal in this process is shown in Fig. 2B. As shown in Fig. 2B, by heating the hot plates HP1 and HP2, the microcapsule 14B is melt so that the seal monomer component 14C is eluted into the base resin 14A.

[0030]

In this case, the melting temperature (110°C) of the microcapsule 14B is lower than a melting point (130°C to 140°C) of a softening point of the base resin 14A, so that the base resin 14A can be prevented from being melt and eluted into the liquid crystal 17 during the process of heating the microcapsule, or the seal monomer component 14C of the base resin 14A can be prevented from being smeared out from the base resin 14A and eluted into the liquid crystal 17.

[0031]

In addition, the melting temperature of the microcapsule is lower than the boiling point of the seal monomer component 14C, so that the seal monomer component 14C can be prevented from being evaporated to be bubbles during the process of heating the microcapsule. In addition, a region for forming the main seal 14 is fit from both surfaces of the first and second transparent substrates 11 and 12 by means of the pair of hot plates HP1 and HP2 and is heated to melt the microcapsule 14B, so that melting the capsule can be uniformly and rapidly carried out, and the unreacted seal monomer component 14C can be prevented from being eluted into the liquid crystal 17 resulted from inclination to one side or temperature distribution within the main seal.

[0032]

Subsequently, the UV rays are irradiated on the main seal 14 to cure the seal right after the process of melting the microcapsule is carried out. In this case, it is done right after the process of melting the microcapsule 14B by heating the main seal 14, so that the seal monomer component 14C at the interface between the main seal 14 and the liquid crystal 17 can be prevented from being eluted.

[0033]

After the above-described processes, a liquid crystal display panel 16 as shown in Fig. 1C is manufactured. In addition, material which is initially mentioned is employed as the main seal in the present embodiment, however, the present invention is not limited thereto, and another denaturalized acrylate instead of the epoxy acrylate may be employed as the base resin, and a radical reaction cleavage type as the photopolymerization initiator may be employed instead of benzoisobutylether or diisopropyl ketone to obtain the same effect.

[0034]

In addition, poly methacrylacid methyl, polystyrene, polyethylene (melting temperature: 80°C to 110°C) are employed as the materials of the microcapsule in the present embodiment, however, the present invention is not limited thereto, and the same effect can be obtained as long as the

thermoplastic resin has the melting temperature lower than the softening point, the melting point, and the boiling point of the base resin or the seal monomer component. In addition, a thermal melting type microcapsule is used instead of destructive pressure type microcapsule in the present invention.

[0035]

The reason is because when the destructive pressure type microcapsule is used, almost the same location is broken when the substrate is compressed to cause the seal monomer component to eluted in almost the same direction per microcapsule so that it is not uniformly spread within in the base resin. However, in a case of the thermal melting type, there is a high possibility that locations where each of the microcapsules is broken are uniformly spread, so that the seal monomer component can isotropically flow within the base resin to make them uniformly spread within the base resin compared to the case of the destructive pressure type.

[0036]

According to the present invention as described above, the seal monomer component is still encapsulated within the microcapsule when the first and second transparent substrates are bonded to each other so that it is not eluted into the liquid crystal, so that contamination of the seal or the alignment defects of the alignment layer near the

seal resulted from the elution, or decoloration due to a degraded voltage retention rate resulted from the contamination of the liquid crystal can be suppressed. Also, the compatability of the base resin and the liquid crystal is significantly low, so that it is not necessary to perform curing right after bonding the transparent substrate so as to prevent the contamination of the liquid crystal, thereby enhancing workability.

[0037]

Furthermore, in the present invention, the diameter of the microcapsule is smaller than the diameter of the spacer member ensuring the gap of the main seal, so that the seal monomer component can be prevented from being smeared out due to a pressure of breaking the capsule when the transparent substrates are aligned and bonded by the pressing. In addition, in the present invention, the main seal is a UV curable adhesive composed of the base resin formed of denaturalized acrylate, and the seal monomer component having a photopolymerization initiator, an adhesive reinforcement agent and a reactive diluent, so that it can be rapidly cured by irradiating the UV rays.

[8800]

In addition, in the present invention, polymerizing the base resin to be cured is carried out right after heating the main seal to melt the microcapsule, so that the seal

monomer component can be prevented from being eluted at the seal/liquid crystal interface. Furthermore, in the present invention, the melting temperature of the microcapsule is lower than the softening point or the melting point of the base resin, so that the base resin can be prevented from being melt and eluted into the liquid crystal during the process of heating the microcapsule, or the seal monomer component of the base resin can be prevented from being smeared out from the base resin and eluted into the liquid crystal.

[0039]

Furthermore, in the present invention, the melting temperature of the microcapsule is lower than the boiling point of the seal monomer component, so that the seal monomer component can be prevented from being evaporated to be bubbles during the process of heating the microcapsule. In addition, in the present invention, heating the main seal to melt the microcapsule includes fitting a region for forming the main seal from both surfaces of the first and second transparent substrates by means of a pair of hot plates, and heating the main seal, so that melting the capsule can be uniformly and rapidly carried out, and the unreacted seal monomer component can be prevented from being eluted into the liquid crystal resulted from inclination to one side or temperature distribution within the main seal.

[Brief Description of the Drawings]

[Fig. 1]

Fig. 1 is a view illustrating a method of manufacturing a liquid crystal display panel associated with an embodiment of the present invention.

[Fig. 2]

Fig. 2 is a cross-sectional view for explaining a state near a seal in a method of manufacturing a liquid crystal display panel associated with an embodiment of the present invention.

[Fig. 3]

Fig. 3 is a graph illustrating a relationship between a softening point and an average molecular weight of epoxy acrylate.

[Fig. 4]

Fig. 4 is a view illustrating a drop injection method in accordance with the related art.

[Fig. 5]

Fig. 5 is a view illustrating a conventional problem.
[Reference Numerals]

11: first transparent substrate

12: second transparent substrate

13: spacer

14: main seal

14A: base resin

14B: microcapsule

14C: seal monomer component

14D: fiber spacer (spacer member)

16: panel

17: liquid crystal

18: color filter

HP1, HP2: hot plate

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-281511

(43)公開日 平成9年(1997)10月31日

(51) Int. C1. 6 GO2F 1/1339 識別記号

G02F 1/1339

FΙ

505

505 500

500

審査請求 未請求 請求項の数7 〇L (全7頁)

(21)出願番号

特願平8-95281

(22)出願日

平成8年(1996)4月17日

(71)出願人 000005223

富士通株式会社

神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番

1号

(72)発明者 田代 国広

神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番

1号 富士通株式会社内

(72)発明者 小池 善郎

神奈川県川崎市中原区上小田中4丁目1番

1号 富士通株式会社内

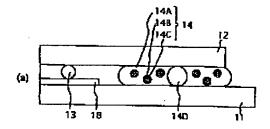
(74)代理人 弁理士 岡本 啓三

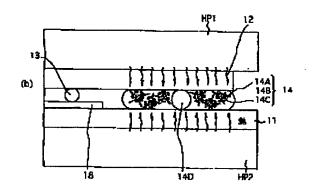
(54)【発明の名称】液晶表示パネルの製造方法

(57)【要約】

【課題】 液晶注入の簡略プロセスとして検討されている注入口を必要としない滴下注入法の改善に関する。

【解決手段】 第1の透明基板11の表示領域内に液晶17を滴下し、重合反応して硬化する分子を主成分とするベース樹脂14Aと、重合反応に寄与するシールモノマー成分14Cを内包し、熱で溶融するマイクロカプセル14B内とを有するメインシール14を用いて、減圧雰囲気で第1の透明基板11と第2の透明基板12とを貼り合せ、貼り合わされた第1の透明基板11と第2の透明基板12とを常圧に戻し、メインシール14を加熱してマイクロカプセル14Bを溶融し、ベース樹脂14Aを重合反応させて硬化させること。





【特許請求の範囲】

【請求項1】 第1の透明基板の表示領域内に液晶を滴 下する工程と、

1

重合反応して硬化する分子を主成分とするベース樹脂 と、前記重合反応に寄与するシールモノマー成分と、前 記シールモノマー成分を内包し、熱で溶融するマイクロ カプセルとを有するメインシールを用いて、減圧雰囲気 で前記第1の透明基板と第2の透明基板とを貼り合せる 工程と.

貼り合わされた前記第1の透明基板と前記第2の透明基 板とを常圧に戻す工程と、

前記メインシールを加熱して前記マイクロカプセルを溶 融する工程と、

前記ベース樹脂を重合反応させて硬化させる工程とを有 することを特徴とする液晶表示パネルの製造方法。

【請求項2】 前記マイクロカプセルの径は、前記メイ ンシールのギャップを確保するスペーサ材の径よりも小 さいことを特徴とする請求項1記載の液晶表示パネルの 製造方法。

【請求項3】 前記メインシールは、変性アクリレート からなる前記ベース樹脂と、

光重合開始剤、接着性強化剤及び反応性希釈剤とを有す る前記シールモノマー成分とからなる紫外線硬化型接着 剤であることを特徴とする請求項1又は請求項2記載の 液晶パネルの製造方法。

【請求項4】 前記ベース樹脂を重合反応させて硬化さ せる工程は、前記メインシールを加熱して前記マイクロ カプセルを溶融する工程の直後に行うことを特徴とする 請求項1,請求項2又は請求項3記載の液晶表示パネル の製造方法。

【請求項5】 前記マイクロカプセルの溶融温度は、前 記べ一ス樹脂の軟化点又は融点よりも低いことを特徴と する請求項1,請求項2,請求項3又は請求項4記載の 液晶表示パネルの製造方法。

【請求項6】 前記マイクロカプセルの溶融温度は、前 記シールモノマー成分の沸点よりも低いことを特徴とす る請求項1,請求項2,請求項3,請求項4又は請求項 5記載の液晶表示パネルの製造方法。

【請求項7】 前記メインシールを加熱して前記マイク ロカプセルを溶融する工程は、一対のホットプレートで 前記第1の透明基板と前記第2の透明基板の両面から前 記メインシールの形成領域を挟みこんで、加熱すること で行われることを特徴とする請求項1,請求項2,請求 項3,請求項4,請求項5又は請求項6記載の液晶表示 パネルの製造方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は液晶注入の簡略プロ セスとして検討されている注入口を必要としない滴下注 入法に関するものであり、メインシール中にスペーサ材 50 【0007】

より径の小さいマイクロカプセルを分散させておき、シ ール硬化直前に熱によりカプセルを破壊してベース樹脂 と硬化剤などのモノマー成分を混合する事でモノマー成 分が液晶中へ溶出するのを防ぎ、シール近傍で配向不良 のない液晶パネルを与えるものである。

[0002]

【従来の技術】液晶パネルに液晶を注入する際に、注入 に要する時間を短縮する為に、滴下注入法といわれる方 法がある。この方法に関連した発明が、本発明の発明者 10 などによって既になされている(特開平7-15979 5)。この滴下注入法について以下で簡単に説明する。 図4は滴下注入法について説明する図である。まず、図 4(a) に示すように、配向処理をした2枚の透明基板 1、2のうちの第一の透明基板1にスペーサ3を散布し て接着する。また、第二の透明基板2には、表示領域を 囲む接着剤よりなるメインシール4を形成した後に、そ の領域に液晶7を滴下する。

【0003】次に、それらの透明基板1、2を張り合わ せてパネル6を形成し、ついで、図4(b) に示すよう 20 に、パネル6の全面に均一な圧力をかけ、液晶7がメイ ンシール4内のすみずみまでいきわたらせ、透明基板 1、2間のギャップが所定値になった後にメインシール 4を硬化すると、図4(c)に示すような液晶パネルが完 成する。

【0004】このような滴下注入法によれば、従来の方 法に比べて液晶注入のプロセスに要する時間が大幅に短 縮化され、必要な液晶のみを使用すればよく、歩留まり が向上して、大幅なコストダウンにつながる。上記の滴 下注入法ではメインシール4として光重合によって硬化 30 する樹脂を用いている。

【0005】この樹脂は、ベース樹脂とモノマー成分と いう2つの成分から構成される。このうちベース樹脂 は、いわゆるプレポリマーという、ポリマーになる前の 段階のものであって、これらが紫外線などで光重合して 硬化し、接着樹脂の主成分をなすものである。また、モ ノマー成分は、光重合開始剤,接着性強化剤,反応性希 釈剤などからなる。

【0006】光重合開始剤は、光重合を開始し、反応中 に消費される物質である。また、接着性強化剤は、メイ 40 ンシールの接着性を強化するために添加されており、反 応性希釈剤は、ベース樹脂の粘性を下げることで、重合 反応が場所によらず均一に進行するために添加されてい る。上記のパネル製造工程では、このようなベース樹脂 とモノマー成分を予め混合したものをメインシール4と して用い、透明基板1、2を圧着して位置合せした後 に、メインシール4に紫外線を照射する。すると、モノ マー成分内の光重合開始剤がベース樹脂の光重合を開始 させ、ベース樹脂が光重合して硬化し、上下透明基板が 接着される。

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記従来の方法では、メインシールとしてベース樹脂とモノマー成分を予め混ぜたものを使用しているので、図5

(a)に示すように透明基板1、2を貼り合せて位置合せした後、図5 (b)に示すように液晶7がメインシール4と接触すると、モノマー成分8が液晶7中に漏出してしまい、漏出の過程でシール4近傍にある不図示の配向膜の配向不良を生じさせてしまう。なお、図5は、シール近傍の液晶パネルの断面を部分的に拡大した図である。

【0008】モノマー成分8の分子量は液晶分子の分子量に近く相溶性が高いので、漏出したモノマー成分はシール4近傍の液晶7中に溶け込んでしまう。モノマー成分8の中にはイオンに解離しやすいものがあり、これが液晶7中に溶出することで液晶7の電圧保持率が低下し、いわゆる色抜けが生じてしまうという問題が生じていた。この傾向は液晶の誘電率異方性が高いほど顕著であって、最近注目されている低電圧駆動の液晶パネルでは殊に問題となっていた。

【0009】本発明は、係る従来例の問題点に鑑みて創作されたものであり、上記課題を解決する事を目的とする。

[0010]

【課題を解決するための手段】本発明は上記課題に鑑み てなされたものであって、第1の透明基板の表示領域内 に液晶を滴下する工程と、重合反応して硬化する分子を 主成分とするベース樹脂と、前記重合反応に寄与するシ ールモノマー成分と、前記シールモノマー成分を内包 し、熱で溶融するマイクロカプセルとを有するメインシ ールを用いて、減圧雰囲気で前記第1の透明基板と第2 の透明基板とを貼り合せる工程と、貼り合わされた前記 第1の透明基板と前記第2の透明基板とを常圧に戻す工 程と、前記メインシールを加熱して前記マイクロカプセ ルを溶融する工程と、前記ベース樹脂を重合反応させて 硬化させる工程とを有することを特徴とする液晶表示パ ネルの製造方法や、前記マイクロカプセルの径は、前記 メインシールのギャップを確保するスペーサ材の径より も小さいことを特徴とする本発明に係る液晶表示パネル の製造方法や、前記メインシールは、変性アクリレート からなる前記ベース樹脂と、光重合開始剤,接着性強化 40 剤及び反応性希釈剤とを有する前記シールモノマー成分 とからなるUV硬化型接着剤であることを特徴とする本 発明に係る液晶パネルの製造方法や、前記ベース樹脂を 重合反応させて硬化させる工程は、前記メインシールを 加熱して前記マイクロカプセルを溶融する工程の直後に 行うことを特徴とする本発明に係る液晶表示パネルの製 造方法や、前記マイクロカプセルの溶融温度は、前記べ 一ス樹脂の軟化点又は融点よりも低いことを特徴とする 本発明に係る液晶表示パネルの製造方法や、前記マイク ロカプセルの溶融温度は、前記シールモノマー成分の沸

点よりも低いことを特徴とする本発明に係る液晶表示パネルの製造方法や、前記メインシールを加熱して前記マイクロカプセルを溶融する工程は、一対のホットプレートで前記第1の透明基板と前記第2の透明基板の両面から前記メインシールの形成領域を挟みこんで、加熱することで前記マイクロカプセルを溶融することを特徴とする本発明に係る液晶表示パネルの製造方法により、上記課題を解決するものである。

【0011】引き続いて、本発明の作用効果について以下で説明する。本発明によれば、ベース樹脂の重合反応に寄与するシールモノマー成分が、熱で溶融するマイクロカプセル内に封入されてなるメインシールを用いているので、第1の透明基板と第2の透明基板とを貼り合せる際にはシールモノマー成分はまだマイクロカプセル内に封入されているのでこれが液晶中に溶出することはなく、この溶出が原因で生じていたシール近傍の配向膜の配向不良やシール際の液晶汚染、またこの液晶汚染が原因となる電圧保持率の低下による色抜けなどの問題を抑止する事が可能になる。

① 【0012】また、ベース樹脂と液晶の相溶性は十分低いので、液晶汚染を防ぐ目的で透明基板の貼り合せ直後にシール硬化を行う必要がなくなるため、作業性が向上する。さらに、本発明において、マイクロカプセルの径は、メインシールのギャップを確保するスペーサ材の径よりも小さくしているので、透明基板を位置合せして圧着して貼り合せる際に、その圧力はスペーサ材の存在によって直接カプセルには伝わらないので、カプセルが割れてシールモノマー成分が染み出してしまうことを抑止する事が可能となる。

30 【0013】なお、本発明において、メインシールは、変性アクリレートからなるベース樹脂と、光重合開始剤,接着性強化剤及び反応性希釈剤とを有するシールモノマー成分とからなる紫外線硬化型接着剤であるため、紫外線を照射することによって迅速に硬化させることが可能となる。また、本発明において、ベース樹脂を重合反応させて硬化させる工程は、メインシールを加熱してマイクロカプセルを溶融する工程の直後に行うので、シール/液晶界面でのシールモノマー成分の溶出を防ぐことが可能となる。

0 【0014】さらに、本発明において、マイクロカプセルの溶融温度は、ベース樹脂の軟化点又は融点よりも低くしているので、マイクロカプセル溶融の際の加熱工程でベース樹脂が溶融して液晶中に溶出することや、ベース樹脂中のシールモノマー成分がベース樹脂から染み出して液晶中に溶出するのを防止する事が可能となる。また、本発明において、マイクロカプセルの溶融温度は、シールモノマー成分の沸点よりも低いので、マイクロカプセル溶融の際の加熱工程でシールモノマー成分が気化して気泡が発生する事を抑止する事が可能となる。

0 【0015】さらに本発明において、メインシールを加

5

熱してマイクロカプセルを溶融する工程は、一対のホットプレートで第1の透明基板と第2の透明基板の両面からメインシールの形成領域を挟みこんで、加熱することでマイクロカプセルを溶融しているので、カプセル材の熱溶融が均等かつ迅速に行う事ができ、シールモノマー成分の溶出が一方に偏ったり、メインシール内で温度分布が発生することにより、液晶中に溶出するのを防止することが可能になる。

[0016]

【発明の実施の形態】以下で本発明の実施形態について図面を参照しながら説明する。図1は滴下注入法について説明する図であり、図2は本実施形態の製造方法に係る液晶パネルのメインシール近傍の断面図である。また図3は、メインシールのベース樹脂(エポキシアクリレート)の平均分子量と軟化点との関係を示すグラフである。

【0017】最初に、本実施形態に係る液晶表示パネルの製造方法について説明する前に、この製造方法において透明基板の貼り合せに用いるメインシールの製造方法について説明する。このメインシールは、ベース樹脂とマイクロカプセル内に封入されたシールモノマー成分とからなるものである。

【0018】ベース樹脂は、いわゆるプレポリマーという、ポリマーになる直前の段階の液状の物質であって、これらが紫外線などで光重合して硬化し、接着樹脂の主成分をなす。本実施形態では、変性アクリレートの一種であるエポキシアクリレート樹脂を用いている。シールモノマー成分は、光重合開始剤、接着性強化剤、反応性希釈剤などからなる。

【0019】光重合開始剤は、光重合を開始し、反応中に消費される物質である。本実施形態ではラジカル反応開裂型のベンゾイソブチルエーテルやジイソプロピルケトンなどを選択する。また、接着性強化剤は、メインシールの接着性を強化するために添加されている。さらに、反応性希釈剤は、ベース樹脂の粘性を下げることで重合反応が場所によらず均一に進行するために添加されている。本実施形態では、1,4ーブタンジオールジアクリート(BUDA)や、1,6ーヘキサンジオールジアクリレート(HDDA)や、ジエチレングリコールジアクリレート(DEGDA)や、ネオペンチルグリコールジアクリレート(NPGDA)等のように揮発性が低く、かつ低粘度な2官能性モノマーの何れかを選択している。

【0020】上記のシールモノマー成分を界面重合法や in-situ重合法などの公知の技術を用いてポリメタクリル酸メチル、ポリスチレン、ポリエチレン(溶融温度 $80\%\sim110\%$)などの熱可塑性樹脂でカプセル化し、 $1\sim5\mu$ m径のマイクロカプセルを作製する。このマイクロカプセルを、軟化点が110%以上になるように分子量を調整したエポキシアクリレート(ベース)

樹脂(本実施形態では平均分子量2000)に10~30wt%量の割合で混合する。

【0021】ここでベース樹脂たるエポキシアクリレートの軟化点をマイクロカプセルの溶融温度の110℃以上にしているのは、マイクロカプセルを熱溶融する際に、ベース樹脂の軟化点が110℃以下であると、マイクロカプセルの溶融と同時にベース樹脂が軟化してしまい、これが液晶中に溶出してしまうことを抑止する為である。

【0022】図3に、エポキシアクリレートの平均分子量と軟化点との関係を示す。エポキシアクリレートの軟化点がマイクロカプセルの溶融温度である80℃~110℃以上になり、マイクロカプセルが溶融してもベース樹脂が軟化しないようにするには、エポキシアクリレートの平均分子量を少なくとも2000以上にすればよいことが図3より知れる。そこで本実施形態ではこれを2000としている。

【0023】上述のベース樹脂と、シールモノマー成分が内包されたマイクロカプセルとの混合物に、透明基板20間のギャップを確保する為のガラスファイバースペーサ(日本電気硝子製/6.5μm)を0.05wt%量加え、揮発性希釈溶媒(例えば酢酸ビニル/沸点73℃)を任意量添加して十分攪拌する。攪拌後真空乾燥により揮発性希釈溶媒を除去することで、メインシールを得る

【0024】また、この他に必要に応じて既知の添加剤 (触媒など) をシールモノマー成分に付与しても良い。 以下で、上述のメインシールを用いた液晶表示パネルの 製造方法について説明する。図1(a)に示すように、 30 上述の工程を経て作製されたメインシール14を、不図 示のカラーフィルタ (膜厚1.5 μm) が表面に形成さ れ、既に配向処理がなされている第1の透明基板11 に、ディスペンサ (不図示) を用いて枠型に塗布し、そ の枠内に液晶(メルク製 ZLI-4792)17を、 セル厚と枠面積に応じた必要量だけ電磁制御弁付ディス ペンサ(不図示)を用いて面内均等に多点滴下する。 【0025】一方、不図示のTFT (Thin Film Transi stor) アクティブマトリクスなどの駆動素子が形成さ れ、既に配向処理がなされた第2の透明基板12には接 着スペーサ(早川ゴム製熱溶融型/5.0 µm) 13を 散布し、150℃の熱で固着させる。次に、第1の透明 基板11を真空チャンバ内の下ステージ(不図示)に載 せてガイド (不図示) で固定する。第2の透明基板12 は保持板(不図示)を第1の透明基板11との間に噛ま せて第1の透明基板11の上方にセットし、粗い位置合 せをしてからガイドで固定し、位置合せをする。その後 真空チャンバを真空引きしたのちに保持板を外し、下ス

テージを上昇させて透明基板 1 1、12を合せこんでゆ

く。メインシール 1 4 が十分プレスされる程度のギャッ 50 プ (~10 μm) まで両透明基板 11, 12 を位置しな . 7

がら下ステージを押上げ、両者を貼り合せる。

【0026】次いで第2の透明基板12の固定を外して 下ステージを下降させ、チャンバ内の雰囲気を常圧にも どし、両基板の間のギャップが所定の厚さ(表示部5. $0 \mu m$, シール部 $6.5 \mu m$) となるまでプレスを行う (図1(b))。このときの液晶パネルのシール近傍の 断面図を図2(a)に示す。なお、図2において18は 膜厚1. 5 μmのカラーフィルタであって、14 Dはメ インシールのギャップを確保し、スペーサ材の一例であ るファイバスペーサである。この時点でメインシール1 4内においてシールモノマー成分14Cは図2(a)に 示すようにまだマイクロカプセル14B内に封入されて おり、これがベース樹脂14Aや液晶中に溶出すること はないので、この溶出が原因で生じていたシール近傍の 配向膜の配向不良やシール際の液晶汚染、またこの液晶 汚染が原因となる電圧保持率の低下による色抜けなどの 問題を抑止する事が可能になる。

【0027】さらに、本発明において、マイクロカプセル 14Bの径は $1\sim5~\mu$ mであって、ファイバスペーサ 14Dの径 $6.5~\mu$ mよりも小さいので、透明基板 1 1、12を位置合せして圧着して貼り合せる際に、その圧力はマイクロカプセル 14B に直接加わらないので、この圧力でマイクロカプセル 14B が割れてしまい、中からシールモノマー成分 14C が染み出すことを抑止する事が可能となる。

【0028】また、ベース樹脂14と液晶17の相溶性は十分低いので、液晶汚染を防ぐ目的で透明基板の貼り合せ直後にシール硬化を行う必要がなくなるため、作業性が向上する。引き続いて第1,第2の透明基板11,12の4辺を仮置合せを行い、これらの透明基板11,12の4辺を仮固定する。

【0029】その後貼り合せた透明基板11,12を一対のホットプレートHP1,HP2を用いて80~110℃(カプセル材に依存)に加熱してマイクロカプセル14Bを溶融させる。 この工程でのシール近傍の断面図を図2(b)に示す。図2(b)に示すように、ホットプレートHP1,HP2の加熱によりマイクロカプセル14Bが溶融して、シールモノマー成分14Cがベース樹脂14A内に流出する。

【0030】このときマイクロカプセルの溶融温度(110℃)は、ベース樹脂14Aの軟化点又は融点(130~140℃)よりも低くしているので、マイクロカプセル溶融の際の加熱工程でベース樹脂が溶融して液晶17中に溶出することや、ベース樹脂14A中のシールモノマー成分14Cがベース樹脂14Aから染み出して液晶17中に溶出するのを防止する事が可能となる。

【0031】また、マイクロカプセルの溶融温度は、シールモノマー成分14Cの沸点よりも低いので、マイクロカプセル溶融の際の加熱工程でシールモノマー成分14Cが気化して気泡が発生する事を抑止する事が可能と

なる。さらに、一対のホットプレートHP1,HP2で第1の透明基板11と第2の透明基板12の両面からメインシール14の形成領域を挟みこんで、加熱することでマイクロカプセル14Bを溶融しているので、カプセル材の熱溶融を均等かつ迅速に行う事ができ、シールモノマー成分14Cの溶出が一方に偏ったり、メインシール14内で温度分布が発生して、未反応のシールモノマー成分14Cが液晶17中に溶出するのを防止することが可能になる。

10 【0032】その後、マイクロカプセル溶融工程の直後に、メインシール14にUV光を照射してシール硬化を行う。このとき、メインシール14を加熱してマイクロカプセル14Bを溶融する工程の直後に行うので、メインシール14/液晶17界面でのシールモノマー成分14Cの溶出を防ぐことが可能となる。

【0033】上記の工程を経た後に、図1(c)に示すような液晶パネル16が形成される。なお、本実施形態ではメインシールを最初に述べた材料を用いて製造しているが、本発明はこれに限らず、例えばベース樹脂はエ20 ポキシアクリレートに代えて他の変性アクリレートを用いてもよいし、光重合開始剤もベンゾイソブチルエーテルやジイソプロピルケトンなどに限らず、ラジカル反応開裂型のものであれば同様の効果を奏する。

【0034】また、マイクロカプセルの材料も本実施形態ではポリメタクリル酸メチル、ポリスチレン、ポリエチレン(溶融温度80℃~110℃)などを用いているが、本発明はこれに限らず、ベース樹脂やシールモノマー成分の軟化点、融点、沸点などよりも低い溶融温度の熱可塑性樹脂であれば同様の効果を奏する。また、本発30明では加圧破壊型のマイクロカプセルを用いずに熱溶融型のマイクロカプセルを用いている。

【0035】これは、加圧破壊型のマイクロカプセルを用いると、基板圧着の際に、マイクロカプセルごとにほぼ同じ箇所で破壊することになり、シールモノマー成分が流出する方向がほぼ同じになってしまい、ベース樹脂内に均一に行き渡らないことがあるが、熱溶融型だとマイクロカプセルごとに破壊する箇所がばらつく可能性が高いので、加圧破壊型のものを用いる場合に比して、ベース樹脂内にシールモノマー成分が等方的に流出して、ベース樹脂内に均一に行き渡るためである。

ひ・、一人倒加りにり一に1」と使るため

[0036]

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、第1の透明基板と第2の透明基板とを貼り合せる際にはシールモノマー成分はまだマイクロカプセル内に封入されているのでこれが液晶中に溶出することはないので、この溶出が原因で生じていたシール近傍の配向膜の配向不良やシール際の液晶汚染、またこの液晶汚染が原因となる電圧保持率の低下による色抜けなどの問題を抑止する事が可能になり、また、ベース樹脂と液晶の相溶性は50十分低いので、液晶汚染を防ぐ目的で透明基板の貼り合

R

せ直後にシール硬化を行う必要がなくなるため、作業性が向上する。

【0037】さらに、本発明において、マイクロカプセルの径は、メインシールのギャップを確保するスペーサ材の径よりも小さくしているので、透明基板を位置合せして圧着して貼り合せる際に、その圧力でカプセルが割れてしまい、シールモノマー成分が染み出すことを抑止する事が可能となる。なお、本発明において、メインシールは、変性アクリレートからなるベース樹脂と、光重合開始剤、接着性強化剤及び反応性希釈剤とを有するシールモノマー成分とからなる紫外線硬化型接着剤であるため、紫外線を照射することによって迅速に硬化させることが可能となる。

【0038】また、本発明において、ベース樹脂を重合 反応させて硬化させる工程は、メインシールを加熱して マイクロカプセルを溶融する工程の直後に行うので、シール/液晶界面でのシールモノマー成分の溶出を防ぐことが可能となる。さらに、本発明において、マイクロカプセルの溶融温度は、ベース樹脂の軟化点又は融点よりも低くしているので、マイクロカプセル溶融の際の加熱 20工程でベース樹脂が溶融して液晶中に溶出することや、ベース樹脂中のシールモノマー成分がベース樹脂から染み出して液晶中に溶出するのを防止する事が可能となる。

プレートで第1の透明基板と第2の透明基板の両面からメインシールの形成領域を挟みこんで、加熱することでマイクロカプセルを溶融しているので、カプセル材の熱溶融が均等かつ迅速に行う事ができ、シールモノマー成分の溶出が一方に偏ったり、メインシール内で温度分布が発生することにより、液晶中に溶出するのを防止することが可能になる。

10

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施形態に係る液晶表示パネルの製造 10 方法を説明する図面である。

【図2】本発明の実施形態に係る液晶表示パネルの製造 方法におけるシール近傍の状態を説明する断面図であ る

【図3】エポキシアクリレートの平均分子量と軟化点との関係を示すグラフである。

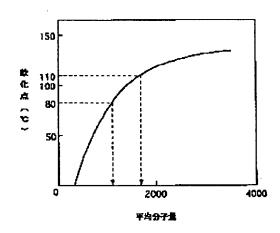
【図4】従来の滴下注入法を説明する図である。

【図5】従来の問題点を説明する図である。

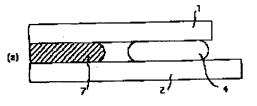
【符号の説明】

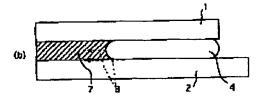
| 1 1 | | 第1の透明基板 |
|--------|--------|------------------|
| 1 2 | | 第2の透明基板 |
| 1 3 | | スペーサ |
| 1 4 | | メインシール |
| 1 4 A | | ベース樹脂 |
| 1 4 B | | マイクロカプセル |
| 1 4 C | | シールモノマー成分 |
| 1 4 D | | ファイバスペーサ (スペーサ材) |
| 16 | | パネル |
| 1 7 | | 液晶 |
| 1 8 | | カラーフィルタ |
| 11 D 1 | II D 2 | sh1 −Pt . 1 |

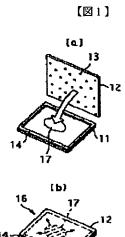
【図3】

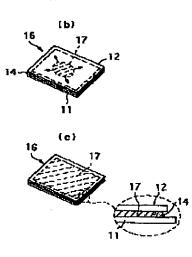


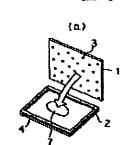
[図5]

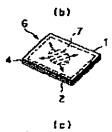


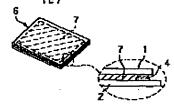




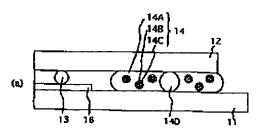


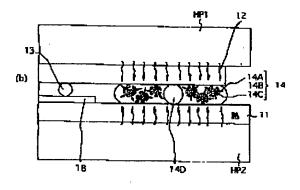






[図2]





【図4】